

高精度ブリルアン利得分光法の開発とフォノン・フォノン散乱の研究

著者	大野 誠吾
号	49
学位授与番号	2229
URL	http://hdl.handle.net/10097/39280

氏名・(本籍)	おおのせいご 大野誠吾
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	理博第2229号
学位授与年月日	平成18年3月24日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科, 専攻	東北大学大学院理学研究科(博士課程)物理学専攻
学位論文題目	高精度ブリルアン利得分光法の開発とフォノン・フォノン散乱の研究
論文審査委員	(主査) 教授 石原 照也 教授 須藤 彰三, 齋藤 理一郎, 齊官 清四郎 助教授 吉沢 雅幸

論文目次

第1章研究背景	5
1.1 はじめに	5
1.2 ブリルアン散乱分光	6
1.3 結晶における超音波減衰の測定	10
1.4 音波物性の疑問点	12
第2章理論	14
2.1 ブリルアン利得分光スペクトル	14
2.2 FM 分光法	39
2.3 結晶における音波の性質	48
2.4 超音波減衰	67
第3章実験	75
3.1 ブリルアン利得分光法	75
3.2 光学系の改良	76
3.3 分解能の測定	80
3.4 FM 分光法の導入	83
3.5 結晶におけるブリルアンスペクトルの測定	102
第4章結果と考察	109
4.1 減衰率の温度依存性と周波数依存性	109
4.2 Herring 過程との比較	112
4.3 熱フォノンの寿命の寄与	115
4.4 PbMoO_4 における測定結果と考察	121
第5章まとめと今後	125
5.1 結晶の超音波減衰を測定する方法	125
5.2 結晶の超音波減衰の起源	125

5.3	ブリルアン利得分光法のまとめと今後	126
5.4	未解決の問題	127
付録A そのほかの測定例, 方法論など		129
A.1	非対称性の評価	129
A.2	非対称性がある場合のFM 分光スペクトル	132
A.3	off-axis propagation	135
付録B 結晶のパラメータ		141
B.1	屈折率	141
B.2	弾性的性質	141
参考文献		142

論文内容要旨

超音波の減衰は物質の非調和性により起こり、その原因による違いは温度依存性や周波数依存性に現れる。それらを調べることで減衰の過程を知ることができる。これまで液体や気体及び比較的温度の高い領域での結晶やガラスのような減衰の大きい音波を調べる手法としてブリルアン散乱測定は用いられてきた。一方、低温における結晶の音波物性では高い周波数分解能が必要でありブリルアン散乱の手法はほとんど用いられておらず、パルスエコー法など超音波測定により研究がなされている。ところが、これらの結晶における超音波減衰の測定(>数GHz)では常温から低温まで統一的な測定が成されておらず、どのような減衰過程が支配的かははっきりとした結論が出ていない。本研究の目的は低温の音波物性にも利用可能なブリルアン分光法を開発し、結晶中の音波の減衰率を測定しその減衰過程を明らかにすることにある。本研究では低温で有利なブリルアン利得分光法の高感度、高分解能化を試みた。

高分解能なブリルアン利得分光装置の開発

この分光法では2台のレーザーから出た光を試料中に対向入射させ、試料中に音波を誘起し、その音波と2つの光がカップルするときにプローブ光が受ける利得を測定する。音波を強制的に誘起するため低温(液体 He 温度)でも信号強度が下がらない利点を持つ。誘起する音波の周波数は2台のレーザーの周波数差に相当し、この分光法の周波数分解能は用いるレーザーのスペクトル幅によるため安定なモノリシックタイプのレーザーを光源として採用した。またブリルアンスペクトルの横軸の決定精度を高めるために2台のレーザーのビート周波数を高周波カウンターを用いて測定しリアルタイムに周波数差を求めた。このことでデータの積算が可能となりS/N比の向上につながっている。ブリルアンシフト ω_B は散乱角 θ に対して $\omega_B \propto \sin \theta / 2$ の関係にある。試料にビームを強く集光すると散乱角に分布が生じそれによりブリルアン線幅が広がり分解能が低下する。本研究では高い分解能が求められるのでビームの集光が緩やかになるように集光用のレンズの焦点距離を決めた。これらにより20kHzの周波数分解能を実現した。測定可能なブリルアンシフト27GHzと比べると6桁の精度でスペクトルの横軸の測定が可能となったといえる。測定感度を上げるためにプローブ光に周波数変調を施すFM分光法を導入した。変調には電気光学変調器を用い、その駆動及び、変調信号の復調のためにデジタルシンセサイザを用いた発振源を用意した。信号を位相が90°異なる2つの発信信号で同時に復調することで応答関数の実部と虚部の同時測定を可能にした。

フォノン・フォノン散乱の研究

低温下の結晶において音波の減衰は小さくなる。その伝播距離は用いる試料よりも長く数cmにも及ぶ。一方でブリルアンスペクトルから音波の減衰率を正しく知るためには十分に長い相互作用長が必要である。その実現のために結晶内で音波を多重反射させ実質的な相互作用長を伸ばす方法をとった。その際、試料の結晶方位は端面に垂直な方向をフォノン集束の方向に一致させ、入射面と出射面の平行度をできるだけ高める必要があることがわかった。フォノン集束の指標として群速度ベクトルの発散を用いてその方向依存性を評価した。 TeO_2 のLモードの音波については[110]方向がフォノン集束の向きに相当する向きであり、 PbMoO_4 のLモードではその方向は $[\cos 29^\circ \sin 29^\circ 0]$ 方向となる。また、群速度ベクトルと波数ベクトルの成す角 β の方向依存性を計算したところ TeO_2 のLモードの[110]方向、 PbMoO_4 のLモードの $[\cos 29^\circ \sin 29^\circ 0]$ 方向は双方ともに $\beta=0^\circ$ となる pure propagation の方向であることが判った。このことから、この方向に音波を伝播させることで光と音波の相互作用領域が最も長くなり、音波が多重反射しやすいばかりか信号が強くなることも期待できる。

結晶内を伝わる音波の減衰が大きく、その伝播距離が試料のサイズと比べて十分に短いような常温ではブリルアン利得スペクトルはローレンツ関数で与えられる。一方その伝播距離が長くなる低温において上述のように端面が平行な試料に対しては音波を多重反射させることができる。そのとき結晶内を多重反射する音波によるブリルアンスペクトル形状は常温で見られるようなローレンツ型ではなくなり、結晶内に定在波として存在できるモードがそれぞれピークを形成し多数本のピークをもつスペクトル形状となる。

このスペクトルから本来の音波の減衰率を知るためには精密な解析が必要であるが、本実験に適用できる理論式は報告されていない。そのため結晶内を多重反射する音波に対してブリルアン利得分光法で得られるスペクトル形状の定式化を行う必要がある。ポンプ光、プローブ光は試料に対して外力を与えそれにより歪みが生まれる。その歪みとカップルしたプローブ光が媒質を通り抜ける際に受ける利得を計算する。媒質の歪みに対する応答として媒質中を1次元的に伝播する音波を考え、試料の両端で自由端とした。こうして得られたスペクトルに対し装置関数などの実験条件を考慮することで減衰の大きい常温から、減衰が小さく音波が多重反射する低温までそれぞれにおけるブリルアン利得スペクトルを再現することに成功した。

その解析から TeO_2 、Lモード、[110]方向における音波の減衰率の温度変化を得ることができた。減衰率 Γ は100K から常温付近では $\Gamma \propto T$ の振る舞いが見られさらに高温では $\Gamma \propto T^0$ となる兆候が見られた。このことは音波の減衰の過程を熱力学的に扱うAkhiezer理論による音波の減衰で説明できる。また低温では $\Gamma \propto T^4$ の依存性を示し、これは $L+L \rightarrow L$ という3フォノン過程で説明される減衰率の温度依存性と一致する。 $L+L \rightarrow L$ の過程はエネルギー保存則、運動量保存則から従来起こりにくいとされてきた。そこで Impulsive Stimulated Thermal Scattering の方法を用いて測定した熱フォノンの寿命と音波の周波数を比較し低温における熱フォノンのエネルギーの不確定性を定量的に求めた。その大きさを考慮することで $L+L \rightarrow L$ の過程が十分起こりうるということがわかった。また結晶の屈折率の偏光方向による違いを利用し減衰率の周波数依存性の測定も行った。その結果、常温付近では減衰率 Γ を $\Gamma \propto \omega^a$ としたときの周波数依存性 a は2程度であり、また低温で a はそれよりも小さいことがわかった。この振る舞いは常温付近ではAkhiezer理論と一致し、また低温においては $L+L \rightarrow L$ の過程に対する減衰率の周波数依存性である $\Gamma \propto \omega^1$ と矛盾しない。これらのことから低温での $\Gamma \propto T^4$ の振る舞いは3フォノン過程の $L+L \rightarrow L$ が起こっているものと考えられる。

PbMoO_4 において $[\cos 29^\circ \sin 29^\circ 0]$ 方向に平行な端面を持つ試料を用意しブリルアンスペクトルの温度変化を測定した。低温では音波の多重反射によるスペクトルの観測ができ、その結果から減衰率の温度

依存性を求めた。減衰率は TeO_2 のときと同様に低温において $\Gamma \propto T^4$ ，高温領域で $\Gamma \propto T^1$ という振る舞いをしておりこの結晶においても TeO_2 と同様の減衰過程が起こっていると考えられる。

論文審査の結果の要旨

結晶中の音波の減衰がどのような物理的機構を通して起こるのかはこれまで明らかにはなっていない。特に低温における音波の熱フォノンによる散乱の機構については測定方法により結果が異なり、共通の認識には至っていない。本研究の目的は、この機構の解明のため、低温音波物性研究に適用できる高精度、高感度なブリルアン利得分光法を開発し、結晶におけるフォノン・フォノン散乱の研究を進展させることにある。

種々改良の後、これまでに例を見ない高い周波数分解能（20 k Hz）と感度を備えたコヒーレントブリルアン利得分光法の開発に成功した。この成功の要因は2台のレーザーの周波数差をリアルタイムで読み取る光ビート計測を採用したことにより、この方式によりレーザーのゆっくりした周波数変動は問題にならなくなった。またデーターの横軸としての周波数差が常にモニターできることから、長時間のデーターの累積が可能となり、S/N比が格段に改善された。

このブリルアン分光装置を使い TeO_2 、 PbMoO_4 などの結晶を試料として音速分散、音波減衰率（内部摩擦）の温度依存性の測定を行った。この実験において40K以下でスペクトルが多数本に分裂する現象を発見し、この現象が音波の結晶内での多重反射によること、またこの現象は低温における正しい音波減衰率を知る上で極めて有効な測定方法になることを理論的、実験的に明らかにした。とりわけ結晶における音波伝播の解析から、結晶方位をフォノン集束の方向に選ぶと多重反射が起こりやすいことを指摘し、また分裂したスペクトルを再現する理論式の導出にも成功している。このフォノン集束の方向にカットされた結晶を使い、常温から液体He温度に至る測定を行った。その結果、音波減衰率の温度変化の機構は、高温部でいわゆるAkhiezer過程が支配的であり、低温部では縦波の3フォノン散乱過程が支配的であることを明らかにした。さらに熱フォノンの寿命測定、音波周波数依存性の測定からも確証を得ている。

以上により大野誠吾は自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有すると認められる。したがって、大野誠吾提出の博士論文は、博士（理学）の学位論文として合格と認める。